

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-76203

(P2002-76203A)

(43)公開日 平成14年3月15日(2002.3.15)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	ターミナル*(参考)
H 0 1 L 23/29		C 0 8 G 59/42	4 J 0 0 2
23/31		59/50	4 J 0 3 6
C 0 8 G 59/42		59/62	4 M 1 0 9
59/50		C 0 8 K 3/00	
59/62		5/00	

審査請求 未請求 請求項の数10 O L (全 10 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号	特願2000-264364(P2000-264364)	(71)出願人	000004455 日立化成工業株式会社 東京都新宿区西新宿2丁目1番1号
(22)出願日	平成12年8月31日(2000.8.31)	(72)発明者	小坂 正彦 茨城県結城市大字鹿窪1772-1 日立化成 工業株式会社下館事業所内
		(72)発明者	土田 悟 茨城県結城市大字鹿窪1772-1 日立化成 工業株式会社下館事業所内
		(72)発明者	尾形 正次 茨城県結城市大字鹿窪1772-1 日立化成 工業株式会社下館事業所内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 ウエハレベルチップサイズパッケージ用の封止用成形材料及びウエハレベルチップサイズパッケージ

(57)【要約】

【課題】 ウエハレベルチップサイズパッケージに適用しても反りが小さく、耐はんだリフロー性、耐熱衝撃性、耐湿性等の信頼性に優れたパッケージが得られる、ウエハレベルチップサイズパッケージ用の封止用成形材料、及びこれにより封止されたウエハレベルチップサイズパッケージを提供する。

【解決手段】 成形品の25℃における弾性率が1000 MPa以下でかつ-55～150℃における平均熱膨張係数が $150 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下であるウエハレベルチップサイズパッケージ用の封止用成形材料、及びこの封止用成形材料により封止されたウエハレベルチップサイズパッケージ。

BEST AVAILABLE COPY

(2)

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】成形品の25℃における弾性率が1000 MPa以下でかつ-55～150℃における平均熱膨張係数が $150 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下であるウエハレベルチップサイズパッケージ用の封止用成形材料。

【請求項2】(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物を必須成分とする請求項1記載の封止用成形材料。

【請求項3】(B)エポキシ樹脂を必須成分とする請求項1又は請求項2記載の封止用成形材料。

【請求項4】(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物及び(B)エポキシ樹脂を必須成分とし、成形品が(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物のマトリックス層中に(B)エポキシ樹脂が微分散した海島構造を有する請求項1記載の封止用成形材料。

【請求項5】(C)硬化剤をさらに含有する請求項3又は請求項4記載の封止用成形材料。

【請求項6】(D)無機充填剤を必須成分とする請求項1～5のいずれかに記載の封止用成形材料。

【請求項7】(E)シラノール縮合触媒をさらに含有する請求項2～6のいずれかに記載の封止用成形材料。

【請求項8】(F)カップリング剤をさらに含有する請求項2～7のいずれかに記載の封止用成形材料。

【請求項9】(C)硬化剤が、フェノール樹脂、芳香族アミン、及び酸無水物の少なくともいずれかである請求項5～8のいずれかに記載の封止用成形材料。

【請求項10】請求項1～9のいずれかに記載の封止用成形材料により封止されたウエハレベルチップサイズパッケージ。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、低反り性に優れ特に高信頼性を要求されるウエハレベルチップサイズパッケージの封止用に好適な成形材料、及びこの成形材料で封止したウエハレベルチップサイズパッケージに関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来から、トランジスタ、IC(半導体集積回路)等の電子部品装置の素子を湿気、埃、外力等から保護するために、樹脂封止が行われている。一般的な電子部品装置においては、個片化した素子をリードフレーム又は基板に搭載し、素子とリードフレーム又は基板との間を電氣的に接続した後、素子、接続部、リードフレーム又は基板の一部若しくは全体を樹脂封止している。封止用成形材料としては通常、熱硬化性のエポキシ樹脂と多量の無機充填剤を配合した比較的弾性率が高い樹脂組成物が使用されている。近年、電子部品装置の小型・薄型・軽量化、高性能・高機能化を図るために素子の配線の微細化、多層化、多ピン化、パッケージの小型

2

薄型化による高密度実装化等が進んでいる。最近では、電子部品装置の小型・薄型・軽量化の要求に対して、IC等の素子とほぼ同じサイズの電子部品装置、すなわち、チップサイズパッケージが開発されている。そのなかで、ウエハ段階で樹脂封止を行うウエハレベルチップサイズパッケージが究極のパッケージとして注目されている。このウエハレベルチップサイズパッケージは、半導体素子として、微細配線が施され、かつ、その表面に外部接続端子引出し用の再配線及び電極が形成され、該電極上にパンプが形成もしくはリードが接続されたシリコンウエハの表面を封止用成形材料で封止し、必要に応じてパンプもしくはリードにはんだ付けを行った後、該シリコンウエハを個々の素子に切断、製品とするものである。この方式はウエハ段階で多数の素子を一度に封止するため、パッケージの小型化と同時に大幅な生産合理化が期待されている。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、ウエハレベルチップサイズパッケージにおいては、封止したウエハが反りやすく、この反りがその後の搬送、研磨、検査、個片化等の各工程で問題となっている。ウエハの径は生産性を高めるため益々大きくなる傾向があり、ウエハ径が大きくなればなるほど反りが大きくなるため、ウエハの反りを小さくすることがこのようなパッケージの普及を進めるうえで重要な課題になっている。このウエハの反りは、主にシリコンチップの熱膨張係数( $3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )と封止用成形材料の熱膨張係数のミスマッチによって発生する。現在、ウエハレベルチップサイズパッケージ用の封止用成形材料には、熱膨張係数を小さくするために多量の無機充填剤を配合したエポキシ樹脂組成物の適用が検討されているが、封止用成形材料にはある程度の流動性が必要で、成形後にボイド、隙間のような内部欠陥を作らないようにするためには無機充填剤の配合量に限界があり、熱膨張係数は $8 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 前後までしか下げられない状況にあり、また、熱膨張係数を低減した封止用成形材料では弾性率が増大して逆に反りが増大する問題があった。そこで、樹脂成分の一部にゴム成分を併用し、弾性率を小さくすることが試みられている。しかし、ベースエポキシ樹脂自体の剛性が比較的高い上にそれよりも更に剛性が高い無機充填剤を多量に配合しているため、十分な弾性率の低減が図られていない。また、封止用成形材料の弾性率を低減するために、ベース樹脂としてゴム弾性体を用いる試みがなされているが、耐はんだリフロー性、耐熱衝撃性、耐湿性等の特性を十分満足するには至っていない。

【0004】本発明はかかる状況に鑑みなされたもので、ウエハレベルチップサイズパッケージに適用しても反りが小さく、耐はんだリフロー性、耐熱衝撃性、耐湿性等の信頼性に優れたパッケージが得られる、ウエハレベルチップサイズパッケージ用の封止用成形材料、及び

(3)

3

これにより封止されたウエハレベルチップサイズパッケージを提供しようとするものである。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】本発明者らは上記の課題を解決するために鋭意検討を重ねた結果、成形品の25℃における弾性率が1000MPa以下でかつ-55～150℃における平均熱膨張係数が $150 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下とすることで成形後に反りが小さく信頼性に優れた封止用成形材料が得られ、上記の目的を達成しうることを見だし、本発明を完成するに至った。

【0006】すなわち、本発明は、(1)成形品の25℃における弾性率が1000MPa以下でかつ-55～150℃における平均熱膨張係数が $150 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下であるウエハレベルチップサイズパッケージ用の封止用成形材料、(2)(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物を必須成分とする上記

(1)記載の封止用成形材料、(3)(B)エポキシ樹脂を必須成分とする上記(1)又は(2)記載の封止用成形材料、(4)(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物及び(B)エポキシ樹脂を必須成分とし、成形品が(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物のマトリックス層中に

(B)エポキシ樹脂が微分散した海島構造を有する上記(1)記載の封止用成形材料、(5)(C)硬化剤をさらに含有する上記(3)又は(4)記載の封止用成形材料、(6)(D)無機充填剤を必須成分とする上記

(1)～(5)のいずれかに記載の封止用成形材料、(7)(E)シラノール縮合触媒をさらに含有する上記(2)～(6)のいずれかに記載の封止用成形材料、(8)(F)カップリング剤をさらに含有する上記(2)～(7)のいずれかに記載の封止用成形材料、及び(9)(C)硬化剤が、フェノール樹脂、芳香族アミン、及び酸無水物の少なくともいずれかである上記

(5)～(8)のいずれかに記載の封止用成形材料、並びに(10)上記(1)～(9)のいずれかに記載の封止用成形材料により封止されたウエハレベルチップサイズパッケージに関する。

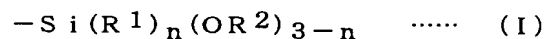
## 【0007】

【発明の実施の形態】本発明の封止用成形材料は、成形品の25℃における弾性率が1000MPa以下でかつ-55～150℃における平均熱膨張係数が $150 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下であれば特に制限はないが、これらの規定を満足する観点からは(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物を含有していることが好ましい。本発明に用いられる(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物は、直鎖のポリアルキレンオキシドを主骨格とし末端にアルコキシシリル基を付加した構造を持つ化合物である。主骨格のポリアルキレンオキシドとしては、例えば、1種以上のアルキレンオキシドの開環重合により得られる単独重合体、

4

ランダム重合体、ブロック共重合体等が挙げられ、単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。市販品としては、サイリル(鐘淵化学工業株式会社製商品名)、エクセスター(旭硝子株式会社製商品名)等が挙げられる。アルコキシシリル基は、ポリアルキレンオキシドを主骨格とする化合物の片末端のみに付加しても良いが、両末端に付加することが好ましい。片末端のみに付加した化合物を用いた場合、硬化時の架橋が不十分となり硬化物の物性の低下につながる傾向がある。末端に付加するアルコキシシリル基は、下記一般式(I)で示される。

## 【化1】



ここで、式中のnは0～2の整数、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>はアルキル基を示し、同一でも異なってもよい。なかでも、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>は炭素数1～5のアルキル基であることが好ましい。また、nは1であることが好ましい。n=0では封止用成形材料の保存安定性が低下する傾向があり、n=2では硬化時の架橋が不十分となり成形品の特性の低下につながる傾向がある。

【0008】(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物の配合量は、成形品の25℃における弾性率が1000MPa以下でかつ-55～150℃における平均熱膨張係数が $150 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下となる量であれば特に制限はないが、本発明の効果を達成するために、(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物と封止用成形材料中の他の樹脂成分との合計量((B)エポキシ樹脂と(C)硬化剤を用いる場合は、(A)、(B)及び(C)の合計量)に対して0.4～0.95重量%に設定されることが好ましく、0.5～0.8重量%がより好ましく、0.6～0.75重量%がさらに好ましい。(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物の重量平均分子量は、特に制限はないが、1000～10000が好ましく、2000～5000がより好ましい。重量平均分子量が1000未満では成形品が脆くなる傾向があり、10000を超えると流動性が低下する傾向がある。

【0009】本発明の封止用成形材料には、電気特性、耐湿性、耐熱性、機械特性、インサート品との接着性等の特性バランスの観点からは(B)エポキシ樹脂を含有していることが好ましい。本発明において用いられる

(B)エポキシ樹脂は、特に制限はなく、封止用成形材料で一般に使用されているエポキシ樹脂を用いることができ、例えば、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールAD、ビスフェノールS、ナフタレンジオール、水添ビスフェノールA等とエピクロロヒドリンの反応により得られるグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、エポキシ樹脂は特に制限はないが、例えば、エポキシ樹脂としてはフェノールノボラック型エポキシ樹脂、

5

オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂をはじめとするフェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF等のフェノール類及び／又は $\alpha$ -ナフトール、 $\beta$ -ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール類とホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ベンズアルデヒド、サリチルアルデヒド等のアルデヒド基を有する化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるノボラック樹脂をエポキシ化したもの、アルキル置換又は非置換のビスフェノールのジグリシジルエーテルであるビスフェニル型エポキシ樹脂、フェノール類及び／又はナフトール類とジメトキシパラキシレン又はビス(メトキシメチル)ビスフェニルから合成されるフェノール・アラルキル樹脂のエポキシ化物、スチルベン型エポキシ樹脂、ハイドロキノン型エポキシ樹脂、フタル酸、ダイマー酸等の多塩基酸とエピクロルヒドリンの反応により得られるグリシジルエステル型エポキシ樹脂、ジアミノジフェニルメタン、イソシアヌル酸等のポリアミンとエピクロルヒドリンの反応により得られるグリシジルアミン型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエンとフェノール類の共縮合樹脂のエポキシ化物、ナフタレン環を有するエポキシ樹脂、トリフェノールメタン型エポキシ樹脂、トリメチロールプロパン型エポキシ樹脂、テルペン変性エポキシ樹脂、オレフィン結合を過酢酸等の過酸で酸化して得られる線状脂肪族エポキシ樹脂、脂環族エポキシ樹脂、及びこれらのエポキシ樹脂をシリコーン、アクリロニトリル、ブタジエン、イソブレン系ゴム、ポリアミド系樹脂等により変性したエポキシ樹脂などが挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。これらのエポキシ樹脂は、十分に精製されたもので、イオン性不純物が少ないものが好ましい。例えば、遊離Naイオン、遊離Clイオンは500ppm以下であることが好ましい。

【0010】本発明の封止用成形材料に(B)エポキシ樹脂を用いる場合は、エポキシ樹脂の硬化剤をさらに含有させることが好ましい。本発明において用いられる

(C)硬化剤としては、特に制限はなく、エポキシ樹脂の硬化剤として一般に使用されているものを用いることができるが、フェノール樹脂、芳香族アミン及び酸無水物が好ましく、保存安定性の観点からはフェノール樹脂がより好ましく、接着性の観点からは芳香族アミンがより好ましい。フェノール樹脂としては、分子中に1個以上のフェノール性水酸基を有するものであれば特に制限はなく、例えば、フェノール、クレゾール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF、フェニルフェノール、アミノフェノール等のフェノール類及び／又は $\alpha$ -ナフトール、 $\beta$ -ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール類とホルムアルデヒド等のアルデヒド基を有する化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるノボラック型フェノール

(4)

6

樹脂、アリル化ビスフェノールA、アリル化ビスフェノールF、アリル化ナフタレンジオール、フェノールノボラック、フェノール等のフェノール類及び／又はナフトール類とジメトキシパラキシレン又はビス(メトキシメチル)ビスフェニルから合成されるフェノール・アラルキル樹脂、ナフトール・アラルキル樹脂などが挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。なかでも液状フェノール樹脂が好ましい。芳香族アミンとしては、芳香環を有するアミン化合物であれば特に制限はなく、例えば、3, 3'-ジエチル-4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、3, 3', 5, 5'-テトラメチル-4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、3, 3', 5, 5'-テトラエチル-4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、ジエチルトルエンジアミン等が挙げられ、市販品としては、エピキュアW、エピキュアZ(油化シェルエポキシ株式会社製商品名)、カヤハードA-A、カヤハードA-B、カヤハードA-S(日本化薬株式会社製商品名)、トートアミンHM-205(東都化成株式会社製商品名)、アデカハードナーEH-101(旭電化工業株式会社製商品名)、エポミックQ-640、エポミックQ-643(三井化学株式会社製商品名)、DETTDA80(Lonza社製商品名)等が入手可能である。これらを単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。なかでも、流動性の観点からは液状芳香族アミンが好ましく、保存安定性の観点からは3, 3'-ジエチル-4, 4'-ジアミノジフェニルメタン及び／又はジエチルトルエンジアミンを主成分とする液状芳香族アミンがより好ましい。酸無水物としては、特に制限はないが、例えば、無水フタル酸、テトラヒドロ無水フタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、エンドメチレンテトラヒドロ無水フタル酸、メチルエンドメチレン無水フタル酸、トリアルキルテトラヒドロ無水フタル酸、無水ピロメリット酸、無水トリメリット酸、無水ナジック酸、無水ハイミック酸、無水コハク酸、ドデセニル無水コハク酸等が挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

【0011】(B)エポキシ樹脂と(C)硬化剤との当量比は特に制限はないが、それぞれの未反応分を少なく抑えるために、(B)エポキシ樹脂に対して(C)硬化剤を0.6~1.6当量の範囲に設定することが好ましく、0.7~1.4当量がより好ましく、0.8~1.2当量がさらに好ましい。ここで、フェノール樹脂の当量はエポキシ基1個に対しフェノール性水酸基1個が反応するものとして計算され、芳香族アミンの当量はエポキシ基1個に対しアミノ基の活性水素1個が反応するものとして計算され、酸無水物の当量はエポキシ基1個に対し酸無水物基1個が反応するものとして計算される。

【0012】本発明の封止用成形材料には、(B)エポ

7

キシ樹脂及び(C)硬化剤を用いる場合、それらの硬化反応を促進するために、硬化促進剤を必要に応じて配合することができる。特に、硬化剤としてフェノール樹脂及び／又は酸無水物を用いる場合には硬化促進剤を配合することが好ましい。本発明において用いられる硬化促進剤としては、一般に封止用成形材料に用いられるもので特に制限はなく、例えば、1, 8-ジアザ-ビスクロ(5, 4, 0)ウンデセン-7、1, 5-ジアザ-ビスクロ(4, 3, 0)ノネン、5, 6-ジブチルアミノ-1, 8-ジアザ-ビスクロ(5, 4, 0)ウンデセン-7等のシクロアミジン化合物及びこれらの化合物に無水マレイン酸、1, 4-ベンゾキノ、2, 5-トルキノ、1, 4-ナフトキノ、2, 3-ジメチルベンゾキノ、2, 6-ジメチルベンゾキノ、2, 3-ジメトキシ-5-メチル-1, 4-ベンゾキノ、2, 3-ジメトキシ-1, 4-ベンゾキノ、フェニル-1, 4-ベンゾキノ等のキノ化合物、ジアゾフェニルメタン、フェノール樹脂などの $\pi$ 結合をもつ化合物を付加してなる分子内分極を有する化合物、ベンジルジメチルアミン、トリエタノールアミン、ジメチルアミノエタノール、トリス(ジメチルアミノメチル)フェノール等の3級アミン類及びこれらの誘導体、2-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール等のイミダゾール類及びこれらの誘導体、トリブチルホスフィン、メチルジフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリス(4-メチルフェニル)ホスフィン、ジフェニルホスフィン、フェニルホスフィン等の有機ホスフィン類及びこれらのホスフィン類に無水マレイン酸、上記キノ化合物、ジアゾフェニルメタン、フェノール樹脂等の $\pi$ 結合をもつ化合物を付加してなる分子内分極を有するリン化合物、テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、トリフェニルホスフィンテトラフェニルボレート、2-エチル-4-メチルイミダゾールテトラフェニルボレート、N-メチルモルホリントテトラフェニルボレート等のテトラフェニルボロン塩及びこれらの誘導体などが挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。硬化促進剤の配合量は、硬化促進効果が達成される量であれば特に限定されるものではないが、(B)エポキシ樹脂及び(C)硬化剤の合計量に対して0.1~10重量%が好ましく、0.5~5重量%がより好ましく、1~3重量%がさらに好ましい。0.1重量%未満では短時間での硬化性に劣る傾向があり、10重量%を超えると硬化速度が速すぎて良好な硬化物を得ることが困難になる傾向がある。

【0013】本発明の封止用成形材料に、(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物及び(B)エポキシ樹脂を用いる場合、弾性率低減の観点からは、成形品中に(A)末端アルコキシシリル変性ポリ

(5)

8

アルキレンオキシド化合物がマトリックス層を形成し、このマトリックス層中に(B)エポキシ樹脂が微分散した海島構造を形成している、すなわち、成形品が(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物のマトリックス層中に(B)エポキシ樹脂が微分散した海島構造を有していることが好ましい。(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物及び(B)エポキシ樹脂の配合割合は、本発明の効果を達成できれば特に制限はないが、重量比(A)/(B)が40/60~90/10に設定されることが好ましく、50/50~80/20がより好ましく、60/40~70/30がさらに好ましい。(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物の配合量が少なくなると、すなわち重量比(A)/(B)が40/60未満になると、成形品のモロホロジーがエラストマーマトリックス中にエポキシ樹脂が微分散したいわゆる海島構造になりにくく、弾性率低減効果が低くなる傾向がある。(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物の配合量が多くなると、すなわち重量比(A)/(B)が90/10を超えると成形品が柔らかくなって、実用的な機械強度が得られにくくなる傾向がある。

【0014】本発明の封止用成形材料には、吸湿性及び熱膨張係数低減、熱伝導性及び強度向上の観点からは、無機充填剤を含有させることが好ましい。本発明において用いられる(D)無機充填剤としては、特に制限はなく、一般に封止用成形材料に用いられるもので、例えば、熔融シリカ、結晶シリカ等のシリカ、炭酸カルシウム、クレー、酸化アルミナ等のアルミナ、窒化珪素、炭化珪素、窒化ホウ素、珪酸カルシウム、チタン酸カリウム、窒化アルミ、ベリリア、ジルコニア、ジルコン、フォステライト、ステアタイト、スピネル、ムライト、チタニア等の粉体、又はこれらを球形化したビーズ、ガラス繊維などが挙げられる。さらに、難燃効果のある無機充填剤としては水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、硼酸亜鉛、モリブデン酸亜鉛等が挙げられる。これらの無機充填剤は単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。なかでも成形品の熱膨張係数低減の観点からはシリカが好ましく、熔融シリカがより好ましい。封止用成形材料の微細間隙への流動性・浸透性の観点からは球形シリカがより好ましい。また、熱伝導性の観点からはアルミナが好ましい。好ましい。(D)無機充填剤の平均粒径は、0.01~30 $\mu$ mが好ましい。平均粒径が0.01 $\mu$ m未満では増粘作用が大きくなって高充填が困難になる傾向があり、30 $\mu$ mを超えると封止用成形材料の狭い隙間への含浸性が悪くなって未充填やワイヤ変形等の問題を起こしやすくなる傾向がある。球形シリカを用いる場合は、その平均粒径は1~20 $\mu$ mの範囲が好ましく、2~10 $\mu$ mの範囲がより好ましい。球形シリカの平均粒径が1 $\mu$ m未満では分散性に劣

(6)

9

る傾向や封止用成形材料にチキソトロピック性が付与されて流動特性に劣る傾向があり、 $20\mu\text{m}$ を超えるとフィラ沈降を起こしやすくなる傾向や、封止用成形材料の微細間隙への浸透性・流動性が低下してボイド・未充填を招きやすくなる傾向がある。(D)無機充填剤の配合量は、成形品の弾性率及び平均熱膨張係数が規定を満たし、本発明の効果を達成できる量であれば特に制限はないが、封止用成形材料に対して封止用成形材料の20～90重量%の範囲に設定されることが好ましく、より好ましくは30～85重量%、さらに好ましくは55～80重量%である。配合量が20重量%未満では熱膨張係数の低減効果が低くなり耐熱衝撃性に劣る傾向があり、90重量%を超えると封止用成形材料の粘度や弾性率が上昇し、流動性、浸透性及びディスペンス性の低下を招いたり、封止したウエハレベルチップサイズパッケージの反りが増大したりする傾向がある。

【0015】本発明の封止用成形材料に(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物を用いる場合は、この縮合反応を促進するための縮合触媒をさらに含有させることが好ましい。(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物の縮合触媒としては、縮合反応を促進するものであれば特に制限はないが、シラノール縮合触媒が好ましい。本発明に用いられる(E)シラノール縮合触媒としては、特に制限はなく、従来公知のものを使用できる。例えば、ステアリン酸錫、オクチル酸鉛等の金属カルボン酸塩、ジ-*n*-ブチル錫ジラウレート、ジオクチル錫ジラウレート等の有機錫化合物、アルミニウムアルコレート、アルミニウムキレート化合物、チタンキレート化合物等が挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。(E)シラノール縮合触媒の配合量は、(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物100重量部に対して0.1～5重量部となるように設定されることが好ましく、0.3～2重量部がより好ましく、0.5～1重量部がさらに好ましい。

【0016】本発明の封止用成形材料には必要に応じて(F)カップリング剤を配合することができる。(F)カップリング剤は、(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物と(B)エポキシ樹脂及び/又は(C)硬化剤との接着性、及び(D)無機充填剤と樹脂成分との接着性を向上させるための架橋剤として用いられる。本発明に用いられる(F)カップリング剤としては、特に制限はなく、エポキシシラン、メルカプトシラン、アミノシラン、アルキルシラン、ウレイドシラン、ビニルシラン等の各種シラン系化合物、チタン系化合物、アルミニウムキレート類、アルミニウム/ジルコニウム系化合物等の封止用成形材料に一般に使用されている公知のカップリング剤を用いることができる。これらを例示すると、ビニルトリクロロシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス( $\beta$ -メトキシエトキ

10

シ)シラン、 $\gamma$ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 $\beta$ -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、 $\gamma$ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 $\gamma$ -アニリノプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -アニリノプロピルメチルジメトキシシラン、 $\gamma$ -[ビス( $\beta$ -ヒドロキシエチル)]アミノプロピルトリエトキシシラン、N- $\beta$ -(アミノエチル)- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -( $\beta$ -アミノエチル)アミノプロピルジメトキシメチルシラン、 $\gamma$ -ジブチルアミノプロピルトリメトキシシラン、N-(トリメトキシシリルプロピル)エチレンジアミン、N-(ジメトキシメチルシリルイソプロピル)エチレンジアミン、メチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、N- $\beta$ -(N-ビニルベンジルアミノエチル)- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -クロロプロピルトリメトキシシラン、ヘキサメチルジシラン、ビニルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、 $\gamma$ -ウレイドトリメトキシシラン、ヒドロキシプロピルトリメトキシシラン等のシラン系カップリング剤、イソプロピルトリイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリス(ジオクチルパイロホスフェート)チタネート、イソプロピルトリ(N-アミノエチル-アミノエチル)チタネート、テトラオクチルビス(ジトリデシルホスファイト)チタネート、テトラ(2,2-ジアリルオキシメチル-1-ブチル)ビス(ジトリデシル)ホスファイトチタネート、ビス(ジオクチルパイロジオクチルパイロホスフェート)オキシセテートチタネート、ビス(ジオクチルパイロホスフェート)エチレンチタネート、イソプロピルトリオクタノイルチタネート、イソプロピルジメタクリルイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリデシルベンゼンスルホンチタネート、イソプロピルイソステアロイルジアクリルチタネート、イソプロピルトリ(ジオクチルホスフェート)チタネート、イソプロピルトリクミルフェニルチタネート、テトライソプロピルビス(ジオクチルホスファイト)チタネート等のチタネート系カップリング剤などが挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。なかでも、(B)エポキシ樹脂及び/又は(C)硬化剤を用いる場合は、(B)エポキシ樹脂及び/又は(C)硬化剤と反応する官能基を有するシラン系カップリング剤が好ましい。エポキシ樹脂との反応性、各種基材との接着性の観点からはアミノシラン等の窒素原子を有するものが好ましく、保存安定性の観点からは $\text{NH}_2\text{CONH}-$ 基を有するアルコキシシラン等のウレイドシランがより好ましい。(F)カップリング剤の配合量は、樹脂成分の合計量((A)末端アルコキシシリ

(7)

11

ル変性ポリアルキレンオキシド化合物、(B) エポキシ樹脂及び(C) 硬化剤の合計量) に対して0.1~10重量%が好ましく、0.5~5重量%がより好ましく、1~3重量%がさらに好ましい。0.01重量%未満では被着体との接着性が低下する傾向があり、10重量%を超えると成形性、作業性及び成形品の特性が低下する傾向がある。

【0017】本発明の封止用成形材料には、IC等の半導体素子の耐湿性、高温放置特性を向上させる観点から陰イオン交換体を必要に応じて配合することができる。\*10



( $0 < \text{X} \leq 0.5$ , mは正の整数)

陰イオン交換体の配合量は、ハロゲンイオン等のイオン性不純物を捕捉できる十分な量であれば特に制限はないが、(B) エポキシ樹脂を用いる場合は、(B) エポキシ樹脂に対して0.1~30重量%が好ましく、1~10重量%がより好ましく、2~5重量%がさらに好ましい。配合量が0.1重量%未満ではイオン性不純物の捕捉が不十分になる傾向があり、30重量%を超えた場合それ以下に比べて効果に大差がないため経済的に不利である。

【0018】さらに、本発明の封止用成形材料には、その他の添加剤として、赤燐、リン酸エステル、メラミン、メラミン誘導体、トリアジン環を有する化合物、シアヌル酸誘導体、イソシアヌル酸誘導体等の窒素含有化合物、シクロホスファゼン等の燐窒素含有化合物、酸化亜鉛、酸化鉄、酸化モリブデン、フェロセン等の金属化合物、三酸化アンチモン、四酸化アンチモン、五酸化アンチモン等の酸化アンチモン、ブrom化エポキシ樹脂などの従来公知の難燃剤、シリコーンオイルやシリコーンゴム粉末等の可撓化剤、染料、カーボンブラック、有機染料、有機顔料、酸化チタン、鉛丹、ベンガラ等の着色剤、イミダゾール、トリアゾール、テトラゾール、トリアジン等及びこれらの誘導体、アントラニル酸、没食子酸、マロン酸、リンゴ酸、マレイン酸、アミノフェノール、キノリン等及びこれらの誘導体、脂肪酸酸アミド化合物、ジチオカルバミン酸塩、チアジアゾール誘導体等の接着促進剤、カルナバワックス、モンタン酸、ステアリン酸、高級脂肪酸、高級脂肪酸金属塩、モンタン酸エステル等のエステル系ワックス、ポリエチレン、酸化ポリエチレンなどの酸化型または非酸化型のポリオレフィン系ワックスなどの離型剤、希釈剤、レベリング剤、消泡剤などを必要に応じて配合することができる。

【0019】本発明の封止用成形材料は、本発明の効果を達成するために、硬化後の成形品の25℃における弾性率が1000MPa以下で、かつ-55~150℃における平均熱膨張係数が $150 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下であることが必要である。ここで、成形品の25℃における弾性率とは、25℃における貯蔵弾性率をいい、動的粘弾性測定装置等を用いて測定することができる。成形品

12

\* 陰イオン交換体としては特に制限はなく、従来公知のものを用いることができるが、例えば、ハイドロタルサイトや、アンチモン、ビスマス、ジルコニウム、チタン、スズ、マグネシウム、アルミニウムから選ばれる元素の含水酸化物等が挙げられ、これらを単独で又は2種以上を組み合わせ用いることができる。なかでも、下記一般式(II)で示されるハイドロタルサイト及びビスマスの含水酸化物が好ましい。

【化2】

の25℃における弾性率は、本発明の効果を達成する観点から1000MPa以下であることが必要であるが、10~800MPaが好ましく、20~600MPaがより好ましく、80~400MPaがさらに好ましい。成形品の25℃における弾性率が10MPaであると、機械的強度が不十分となる傾向があり、800MPaを超えると、ウエハの反り低減効果が少なくなる傾向がある。成形品の-55~150℃における平均熱膨張係数は、封止用成形材料を硬化させた成形品をTMA等を用いて-55℃~150℃まで昇温させた際の熱膨張量の変位量から求める一般的な方法により測定することができる。ウエハの反りを低減する観点からは低いほど好ましく、 $130 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下がより好ましく、 $110 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下がさらに好ましい。さらにはシリコンチップの熱膨張係数 $3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ に近づくほど好ましい。

【0020】本発明においては、封止用成形材料に配合する各種成分の組み合わせ及び配合量を調整することによって、成形品の25℃における弾性率が1000MPa以下で、かつ-55~150℃における平均熱膨張係数が $150 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下である封止用成形材料を得ることができる。(A) 末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物、(B) エポキシ樹脂及び(C) 硬化剤の選定と(D) 無機充填剤の配合量が特に重要である。

【0021】本発明の封止用成形材料は、各種成分を均一に分散混合できるのであれば、いかなる手法を用いても調製できるが、一般的な手法として、所定の配合量の成分を秤量し、三本ロール、らいかい機等によって分散混練を行う方法を挙げることができる。本発明の封止用成形材料は、液状の樹脂成分を用いて、または固体の材料を有機溶剤に溶解して液状封止用成形材料として使用することもできる。有機溶剤としては、特に制限はないが、加熱硬化時の急激な揮発による気泡形成を避ける観点からは沸点が100℃以上のものが好ましい。例えば、トルエン、キシレン、ジメチルアセトアミド、ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、2-(2-ブトキシエトキシ)エタノール、ジプロピレングリコールメチルエーテル、4-ヒドロキシ-4-メチル-2-

(8)

13

ペンタノン、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル、γ-ブチロラクトン等が挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。この液状封止用成形材料は、板又はフィルム上に薄く塗布して硬化反応が余り進まないような条件で有機溶剤を飛散させて得られるシート状又はフィルム状の封止用成形材料として使用することもできる。

【0022】本発明の封止用成形材料により封止されたウエハレベルチップサイズパッケージとしては、シリコンウエハ表面に、素子及び微細配線が施され、かつ、その表面に外部接続端子引出し用の再配線及び電極が形成され、電極上にバンプが形成又はリードが接続されたシリコンウエハの表面を、本発明の封止用成形材料で封止し、必要に応じてバンプ又はリードにはんだ付けを行い、その後このシリコンウエハを個々の素子に切断して得られる、一般的なウエハレベルチップサイズパッケージが挙げられる。

【0023】本発明の封止用成形材料を用いて、少なくともウエハ上に形成された素子を含む部分又はウエハの素子形成面全体を封止する方法としては、封止用成形材料が固形の場合は低圧トランスファー成形法が最も一般的であるが、インジェクション成形法、圧縮成形法等を用いてもよい。封止用成形材料が常温で液状又はペースト状の場合はディスペンス方式、注型方式、印刷方式等が挙げられる。本発明の封止用樹脂組成材料の性状及び封止方法はウエハ上に形成された外部端子構造や生産方\*

表1 配合組成

配合成分	実施例				(量部)			
	1	2	3	4	1	2	3	4
サイリル SATO 10	30.0	30.0	25.0	33.0	—	—	—	—
ビスフェノールA型エポキシ樹脂	10	10	10	10	10	—	6	10
ダイマー酸変性エポキシ樹脂	—	—	—	—	—	10	—	—
末端エポキシ変性ブタジエン	—	—	—	—	—	—	4	—
フェノール樹脂	6.0	6.0	—	—	6.0	2.7	4.5	—
芳香族アミン	—	—	3.4	—	—	—	—	3.4
酸無水物	—	—	—	8.5	—	—	—	—
2-ウンデシルイミダゾール	0.2	0.2	—	0.2	0.2	0.2	0.2	—
無機充填剤	47.4	110.6	91.9	123.0	38.3	30.6	14.8	66.9
ジブチル錫シラウレート	0.2	0.2	0.2	0.2	—	—	—	—
ウレイドシラン	1.0	1.0	0.8	1.0	0.2	0.2	0.1	0.3
無機充填剤量(重量%)	50	70	70	70	70	70	50	83

【0027】作製した実施例及び比較例の封止用成形材料を次の各試験により評価した。評価結果を表2に示す。

#### (1) 弾性率

封止用成形材料をアルミ箔箱中で、120℃で1時間、150℃で3時間の条件で加熱硬化させて、1mm×3mm×30mmに切り出した試験片を、動的粘弾性測定装置(株式会社レオロジ製レオスペクトラDVE-V4型)を用いて、周波数10Hz、昇温速度3℃/分の条件で動的粘弾性の-190～250℃の温度分散を測定

14

\* 式によって適宜選択することができる。

#### 【0024】

【実施例】次に実施例により本発明を説明するが、本発明の範囲はこれらの実施例に限定されるものではない。

#### 【0025】実施例1～4、比較例1～4

末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物としてサイリル SATO 10 (鍾淵化学工業株式会社製商品名)、エポキシ樹脂としてビスフェノールA型エポキシ樹脂(油化シェルエポキシ株式会社製商品名エピコート828)、ダイマー酸変性エポキシ樹脂(油化シェルエポキシ株式会社製商品名エピコート878)、末端エポキシ変性ブタジエン(日本曹達株式会社製商品名EPB-13)、硬化剤としてフェノール樹脂(明和化成株式会社製商品名MEH-8000)、芳香族アミン(日本化薬株式会社製商品名カヤハードA-A)、酸無水物(日立化成工業株式会社製商品名MHAC-HR)、硬化促進剤として2-ウンデシルイミダゾール(四国化成工業株式会社製商品名キュアゾールC11Z)、無機充填剤として球形溶融シリカ(株式会社トクヤマ製商品名SE-8)、シラノール縮合触媒としてジブチル錫シラウレート(和光純薬工業株式会社製)、シランカップリング剤としてウレイドシラン(東レ・ダウコーニング・シリコン株式会社製商品名AY43-031)を、それぞれ表1に示す組成で配合し、三本ロールにて混練分散した後、真空脱泡して、実施例及び比較例の封止用成形材料を作製した。

#### 【0026】

#### 【表1】

(量部)

し、25℃の貯蔵弾性率を、25℃における弾性率(MPa)とした。

#### (2) 平均熱膨張係数

封止用成形材料をアルミ箔箱中で、120℃で1時間、150℃で3時間の条件で加熱硬化させて、4mm×4mm×30mmに切り出した試験片を、TMA(理学機械株式会社製)を用いて、引張りモードで測定温度-190～250℃、昇温速度5℃/分の条件で熱膨張量を測定し、-55～150℃における平均熱膨張係数を算出した。



(9)

15

## (3) ウエハの反り

アルミジグザグ配線上に外部接続端子引出し用の再配線及び電極を形成し、電極上に高さ120 $\mu$ mのバンプを形成した6インチシリコンウエハ(600 $\mu$ m厚)の表面全体に、封止用成形材料を印刷方式で厚さが100 $\mu$ mになるように塗布した後に120℃で1時間、150℃で3時間の条件で加熱硬化させた後にバンプにはんだボールを取り付けた。この成形品を封止面が上になるように常盤に載せて、凹状に反った成形品(ウエハ)の外周の一部を常盤に押し付け、持ち上がった外周部と常盤との最大距離をマイクロメータで測定し、ウエハの反り(mm)とした。

## (4) 耐はんだリフロー性

上記(3)と同様に成形したシリコンウエハ成形品を10mm角のチップに個片化してウエハレベルチップサイズパッケージを作製し、85℃、85%RHで168時間加湿した後、260℃で10秒間加熱を3回繰返すリフロー処理を行い、超音波探傷装置で封止用成形材料とチップ界面の剥離の有無を観察した。試験パッケージ数

表2 評価結果

評価項目	実施例				比較例			
	1	2	3	4	1	2	3	4
弾性率(MPa)	20	90	280	120	12500	1200	2200	15000
平均熱膨張係数( $\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )	130	110	100	105	34	95	85	17
ウエハの反り(mm)	0.17	0.15	0.18	0.17	4.5	2.0	2.5	3.5
耐はんだリフロー性	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	15/20	5/20	0/20
耐熱衝撃性(単品)	0/20	0/20	0/20	0/20	20/20	0/20	0/20	20/20
" (基板実装品)	0/20	0/20	0/20	0/20	20/20	0/20	10/20	20/20
耐湿信頼性	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	20/20	20/20	0/20

【0029】弾性率及び平均熱膨張係数が本発明の規定を満たさない比較例1~4では、いずれもウエハの反りが大きく、耐はんだリフロー性、耐熱衝撃性及び耐湿信頼性の少なくともいずれかに劣る。これに対して、本発明の実施例1~4はいずれも、反りが著しく小さく、耐はんだリフロー性、耐熱衝撃性及び耐湿信頼性にも優れる。

16

(20)に対する剥離発生パッケージ数で評価した。

## (5) 耐熱衝撃性

上記(4)と同様に作製したウエハレベルチップサイズパッケージ(単品)を、-50℃/150℃、各10分のヒートサイクルで500サイクル処理し、導通試験を行ってアルミ配線の断線不良を調べ、不良パッケージ数/測定パッケージ数で評価した。また、ウエハレベルチップサイズパッケージをガラスエポキシ基板(FR-5)にはんだ付け実装した実装品についても同様の評価を行った。

## (6) 耐湿信頼性

上記(4)と同様に作製したウエハレベルチップサイズパッケージを121℃、85%RH、0.2MPaのPCT条件で336時間処理後、アルミ配線の断線不良を導通試験で確認し、不良パッケージ数/測定パッケージ数で評価した。

【0028】

【表2】

【0030】

【発明の効果】本発明になる封止用成形材料を用いることにより、実施例で示したように反りが小さく、耐はんだリフロー性、耐熱衝撃性、耐湿信頼性等の信頼性に優れるウエハレベルチップサイズパッケージを得ることができるので、その工業的価値は大である。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7

識別記号

F I

テーマコード(参考)

C 0 8 K 3/00  
5/00  
C 0 8 L 63/00  
71/02  
H 0 1 L 23/14

C 0 8 L 63/00  
71/02  
H 0 1 L 23/30  
23/14

R  
R

(10)

Fターム(参考) 4J002 CC04Y CD00X CH05W EF126  
EL136 EN056 EX009 FD017  
FD14Y FD146 FD208 GQ05  
4J036 AA01 DB15 DC10 FA01 FA10  
FA12 FA13 FA14 FB07 FB12  
JA07  
4M109 AA01 BA07 CA02 CA05 CA12  
CA21 EA01 EA02 EB02 EB04  
EB12 EC20

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第7部門第2区分

【発行日】平成14年6月28日(2002.6.28)

【公開番号】特開2002-76203(P2002-76203A)

【公開日】平成14年3月15日(2002.3.15)

【年通号数】公開特許公報14-763

【出願番号】特願2000-264364(P2000-264364)

【国際特許分類第7版】

H01L 23/29

23/31

C08G 59/42

59/50

59/62

C08K 3/00

5/00

C08L 63/00

71/02

H01L 23/14

【F I】

H01L 23/30

R

C08G 59/42

59/50

59/62

C08K 3/00

5/00

C08L 63/00

71/02

H01L 23/14

R

【手続補正書】

【提出日】平成14年3月15日(2002.3.15)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0008

【補正方法】変更

【補正内容】

【0008】(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物の配合量は、成形品の25℃における弾性率が1000MPa以下でかつ-55~150℃における平均熱膨張係数が $150 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下となる量であれば特に制限はないが、本発明の効果を達成するために、(A)末端アルコキシシリル変性ポリアルキレンオキシド化合物と封止用成形材料中の他の樹脂成分との合計量( (B)エポキシ樹脂と (C)硬化剤を用いる場合は、(A)、(B)及び(C)の合計量)に対して40~95重量%に設定されることが好ましく、50~80重量%がより好ましく、60~75重量%がさらに好ましい。(A)末端アルコキシシリル変性ポリアル

ルキレンオキシド化合物の重量平均分子量は、特に制限はないが、1000~10000が好ましく、2000~5000がより好ましい。重量平均分子量が1000未満では成形品が脆くなる傾向があり、10000を超えると流動性が低下する傾向がある。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0009

【補正方法】変更

【補正内容】

【0009】本発明の封止用成形材料には、電気特性、耐湿性、耐熱性、機械特性、インサート品との接着性等の特性バランスの観点からは(B)エポキシ樹脂を含有していることが好ましい。本発明において用いられる

(B)エポキシ樹脂は、特に制限はなく、封止用成形材料で一般に使用されているエポキシ樹脂を用いることができ、例えば、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールAD、ビスフェノールS、ナフタレンジオール、水添ビスフェノールA等とエピクロロヒドリン

(2)

1  
の反応により得られるグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂をはじめとするフェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF等のフェノール類及び/又は $\alpha$ -ナフトール、 $\beta$ -ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール類とホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ペンズアルデヒド、サリチルアルデヒド等のアルデヒド基を有する化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるノボラック樹脂をエポキシ化したもの、アルキル置換又は非置換のビスフェノールのグリシジルエーテルであるビスフェニル型エポキシ樹脂、フェノール類及び/又はナフトール類とジメトキシパラキシレン又はビス(メトキシメチル)ビスフェニルから合成されるフェノール・アラキル樹脂のエポキシ化物、スチルベン型エポキシ樹脂、ハイドロキノン型エポキシ樹脂、フタル酸、ダイマー酸等の多塩基酸とエピクロヒドリンの反応により得られるグリシジルエステル型エポキシ樹脂、ジアミノジフェニルメタン、イソシアヌル酸等のポリアミンとエピクロヒドリンの反応により得られるグリシジリアルアミン型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエンとフェノール類の共縮合樹脂のエポキシ化物、ナフタレン環を有するエポキシ樹脂、トリフェノールメタン型エポキシ樹脂、トリメチロールプロパン型エポキシ樹脂、テルペン変性エポキシ樹脂、オレフィン結合を過酢酸等の過酸で酸化して得られる線状脂肪族エポキシ樹脂、脂環族エポキシ樹脂、及びこれらのエポキシ樹脂をシリコーン、アクリロニトリル、ブタジエン、イソプレン系ゴム、ポリアミド系樹脂等により変性したエポキシ樹脂などが挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。これらのエポキシ樹脂は、十分に精製されたもので、イオン性不純物が少ないものが好ましい。例えば、遊離Naイオン、遊離Clイオンは500ppm以下であることが好ましい。

2  
【手続補正3】  
【補正対象書類名】明細書  
【補正対象項目名】0026  
【補正方法】変更  
【補正内容】  
【0026】  
【表1】

表1 配合組成

(重量部)

配 合 成 分	実 施 例				比 較 例			
	1	2	3	4	1	2	3	4
サイリルSATO10	30.0	30.0	25.0	33.0	—	—	—	—
ビスフェノールA型エポキシ樹脂	10	10	10	10	10	—	6	10
ダイマー酸変性エポキシ樹脂	—	—	—	—	—	10	—	—
末端エポキシ変性ブタジエン	—	—	—	—	—	—	4	—
フェノール樹脂	6.0	6.0	—	—	6.0	2.7	4.5	—
芳香族アミン	—	—	3.4	—	—	—	—	3.4
酸無水物	—	—	—	8.5	—	—	—	—
2-ウンデシルイミダゾール	0.2	0.2	—	0.2	0.2	0.2	0.2	—
無機充填剤	47.4	110.6	91.9	123.0	38.3	30.6	14.8	66.9
ジブチル錫ラウレート	0.2	0.2	0.2	0.2	—	—	—	—
ウレイドシラン	1.0	1.0	0.8	1.0	0.2	0.2	0.1	0.3
無機充填剤量(重量%)	50	70	70	70	70	70	50	83

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**